

令和 4 年 6 月 12 日現在

機関番号：32689

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2017～2021

課題番号：17H01344

研究課題名（和文）電場中での表面プロトニクスが拓く新規低温触媒プロセスの学理と応用

研究課題名（英文）Low temperature catalysis by surface protonics promoted by an electric field

研究代表者

関根 泰（SEKINE, YASUSHI）

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：20302771

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 33,300,000円

研究成果の概要（和文）：電場を印加した低温での表面イオニクスによる触媒反応の学理を構築し、その応用展開を狙った。結果として、メタンの二酸化炭素改質や、逆水性ガスシフトなどの吸熱反応において、表面イオニクスを高度に制御して、それを活かした低温反応系（100度台）を構築し、その学理を解明することが出来た。これにより、次世代のオンデマンド低温作動触媒プロセスの世界を開拓することが出来た。また、半導体担体上での表面固体イオニクスの評価手法の確立や、その体系化もすすめることが出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

再生可能エネルギーを利用しての、ほしいときにほしだけ化学反応を駆動させることができる体系を見出し、その学理を構築し、多くの応用展開をはかることが出来た。これにより、今後オンデマンドで再生可能エネルギーを用いた低温化学反応を体系的に用いることができることが期待される。

研究成果の概要（英文）：This project aimed to establish the science of catalytic reactions by surface ionics at low temperatures under an applied electric field, and to develop its application. As a result, we were able to construct a low-temperature reaction system (in the 100 °C range) that utilises highly controlled surface ionics in endothermic reactions such as the reforming of methane with carbon dioxide and reverse water gas shift, and elucidate the science behind this. This has paved the way for the next generation of on-demand, low-temperature-operated catalytic processes. We were also able to establish an evaluation method for surface solid-state ionics on semiconductor supports and systematise it.

研究分野：触媒化学

キーワード：表面イオニクス 二酸化炭素 バイオメタン 水素製造 低温触媒反応

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

我々は新規に、電場中で表面プロトニクスにより低温での触媒反応が可能になることを見出した。半導体に金属を担持した触媒を用い(Pd/CeO₂ 等)、電場中にて低温で水蒸気などを共存させると、触媒表面吸着種を介したプロトン移動が誘起され、従来の触媒反応より大幅に低温で高速かつ高効率に触媒反応が進行する。これは、プロトンが絡む数多くの反応へ展開が期待される(水素製造やアンモニア合成、選択水素化、加水分解、エステル化など)。このような新しい触媒反応系の学理解明と応用展開を進めるとともに、さらには、電子移動よりもより効率の高いスピン伝導を活かした触媒反応にも挑戦し、電荷の局所緩和のみならずスピン局所緩和を用いた選択反応の可能性も示したい。実現すれば低温での触媒反応に新たな世界を拓くことが出来る。

2. 研究の目的

我々は電場中で表面プロトニクスにより低温での触媒反応が可能になることを見出し、その学理体系化と応用展開を進めてきた。酸化物半導体を触媒の担体とし、金属の微細な粒子を担持した触媒を用いて、電場中にて低温で水素や水蒸気などを共存させると、触媒表面での吸着種を介したプロトン移動が誘起され、従来の熱による触媒に比べて、大幅に低温で高速・高効率に触媒反応が進行した。不均一触媒の表面において、プロトンのホッピングが重要な役割を果たしており、水素製造やアンモニア合成、選択脱水素、二酸化炭素再資源化などに適用可能であることを示してきた。このような新しい触媒反応系の学理解明と応用展開を進めるとともに、さらにより効率の高い表面イオン伝導を進めうる材料を見出し、これをプロセス化し、低温での触媒反応に新たな世界を拓くことを目的としている。

3. 研究の方法

含浸法を用いて金属担持 CeO₂ 触媒を調製した。担体として触媒学会の CeO₂ (JRC-CEO-1) を使用し、以下の方法で活性金属を担持した。393 K で 24 時間乾燥させ、773 K で 3 時間焼成した。得られた試料を加圧成型しふるいにかけて、整粒した。その後、Ar とともに濃度 20% の H₂ ガスを 100 mL min⁻¹ で流し、723 K で 30 分間還元した。

In-situ DRIFTS 測定を FT-IR 測定器 (FT/IR-6200; Jasco Co.) を用いて行った。FT-IR 測定器には、ZnSe 窓を用い、検出器には液体窒素で冷却した MCT-M を使用した。スペクトルの分解能は 4 cm⁻¹ で 50-200 回の積算をかけて測定した。テフロン製で絶縁体である DRIFTS セルに 2 つの電極を接続し、非電場条件で 50 mg、電場印加条件でペレット状触媒を DRIFTS セルにセットし、直流電流を流して電場を印加した。バックグラウンドスペクトルは Ar 雰囲気下で、423 K、電場なしの条件で測定した。

触媒活性試験は固定床流通式反応器を用いて行った。触媒層の底面に熱電対を挿入した。電場印加時に生じるジュール熱による発熱は無視できる。直流電圧電源を用いて電場を印加し、電流と印加電圧はオシロスコープで測定した。コールドトラップを通り抜けた反応ガスを GC-FID, TCD (GC-2014; Shimadzu Co.) で分析した。

粉体 X 線回折法 (XRD, RINT-Ultima ; Rigaku Co.) を用いて、触媒活性試験前後の触媒の結晶構造を分析した。

調製した触媒の N₂ 物理吸脱着等温線を表面積分析装置 (Gemini ; Micrometrics Instrument Co.) を用いて 77 K で計測した。測定には BET 法を用い、触媒の比表面積を得た。

また、金属粒子径を電界放出型電子顕微鏡 (FE-TEM, JEM-2100F; JASCO Co.) を用いて計測した。計測は加速電圧 200 kV、分解能 0.1 nm で行った。

X 線光電子分光測定を PHI 5000 Versa Probe II (ULVAC-PHI Co.) を用いて行った。前処理の後、雰囲気下にそれぞれ 20 分間置いた。試料を分析装置に移送する際は、空気に暴露させないためにトランスファーベッセルを用いた。得られた結合エネルギーは、C-H または C-C 結合 (284.8 eV) に帰属される C1s を用いて校正した。ピークのフィッティングは Shirley 法で行った。

4. 研究成果

低温における電場印加時の反応活性を評価するため、触媒活性試験を行った。まず触媒として 1 wt% Pt/CeO₂ を選択し、触媒活性試験を進めた。その結果から、電場印加時における CH₄ と CO₂ の転化率は 473 K でそれぞれ 15% 以上だった一方、電場非印加時に同じ温度で反応は進行しなかった。また、反応中のカーボンバランスはほとんど 100% であり、触媒の失活を引き起こす炭素析出はほとんど起こらなかった。アレニウスプロットより、電場非印加時では見かけの活性化エネルギーは 104 kJ mol⁻¹ と算出された一方、電場を印加すると値は大きく低下し、4.82 kJ mol⁻¹ となった。また過去の報告と同様に、電場印加時の反応における H₂/CO 比は低温領域で高くなった。

電場印加の前後で CO₂ の吸着状態に現れる変化を観測するため、*in-situ* DRIFTS 測定を行った。CeO₂ を利用した触媒への CO₂ 吸着は詳細に検討されている。1160 cm⁻¹ 付近のピーク面積が電

場の印加で増大した。通常、 CO_2 は金属酸化物に吸着し、carbonate や bicarbonate といった吸着種を形成する。また、DFT 計算や様々な実験結果から、格子酸素欠陥が気相 CO_2 の吸着を促進させる。担体における表面酸素は CH_4 の解離に利用され、その結果として格子酸素欠陥が生じる。そのため、 CH_4 と表面酸素の反応は CO_2 吸着の重要な要素だといえる。そこで、電場印加時に CH_4 が格子酸素欠陥の形成に与える効果を調べるため、XPS 測定を行い、Ce の電子状態を評価した。測定では、473 K でそれぞれ CH_4 、 CO_2 、および Ar 雰囲気下での 1wt%Pt/CeO₂ 中の Ce^{3+} と Ce^{4+} の割合を電場印加、非印加条件でそれぞれ比較した。 CH_4 雰囲気下で電場を印加したときの Ce^{3+} の割合 (19.4%) は、電場非印加時 (16.8%) に比べて大きくなった。 CH_4 雰囲気下で Ce^{3+} の割合が増加したことは、電場印加時に CH_4 による酸素種の消費が起こったこと、言い換えればより多くの格子酸素欠陥が生じたことを示している。carbonate 種に帰属される領域のピーク面積が増加した。Carbonate 種の増加は、 CH_4 がこの条件下において唯一の酸素供給源である表面酸素を消費し、結果として格子酸素欠陥が生じたことを意味する。一方、不活性ガスである Ar 雰囲気中で電場を印加すると Ce^{3+} の割合は 0.5% しか増加しなかった。これは CH_4 雰囲気の結果と比較して非常に小さい。このことは単に電場を印加しただけでは表面酸素が放出されないことを意味する。

CO_2 雰囲気における Ce^{3+} の割合は、電場の印加によって 17.5% から 18.3% に増加した。これは CO_2 の解離による carbonate 種の増加を示している。CeO₂ 担体の表面酸素が吸着 CO_2 を酸化することで carbonate 種が生成し、それに伴って Ce の還元が進行する。つまり、 CO_2 雰囲気中で電場印加時に起こった Ce^{3+} の増加は、表面酸素との反応による CO_2 の解離が促進されたことを意味する。これらの結果から、電場によって表面酸素の反応性が向上することがわかった。

さらに 1wt%Pd 担持 CeO₂-ZrO₂ 触媒 (Ce_{0.7}Zr_{0.3}O₂、CZO) を用いて酸素同位体交換試験を行った。この試験では CZO の表面酸素を ¹⁶O に置換した後、¹⁸O₂ 雰囲気下で電場を印加し、生成ガスを質量分析器によって分析した。結果として、電場を印加した直後に ¹⁸O₂ の量は減少し、同時に ¹⁶O¹⁸O が現れた一方で、¹⁶O₂ はわずかにしか現れなかった。これらの結果は、表面酸素は電場を印加するだけでは脱離せず、ガス種との反応によって減少することを示している。また、電場印加時のみ表面酸素と気相 ¹⁸O₂ の反応が進行することから、電場により表面酸素のガス種に対する反応性が向上すると考えられる。

次に、 CO_2 、 CH_4 交互供給試験を電場印加、非印加の条件でそれぞれ行い、DRM 反応における CO_2 と CH_4 の挙動について調べた。ここでは CO_2 と CH_4 を切り替え、反応ガスをガスクロマトグラフィーで分析した。その結果、電場非印加時には CO が観測できなかったが、電場を印加することで CO が生成した。CO は CO_2 、 CH_4 を切り替えた後に生成した。このような CO の生成は、触媒によって CH_4 の酸化と CO_2 の還元が起こったことを意味する。また、どちらのガスを供給した場合でも、CO の生成量は時間経過によって減少した。これは、連続した原料ガスの供給あるいは表面酸素の消費によって、時間の経過とともに触媒の酸化、還元能が低下したためである。 CH_4 雰囲気下では、表面酸素は CH_4 との反応で取り除かれ、表面酸素が減少することで CO の生成量が減少する。一方で、 CO_2 雰囲気下では CO_2 は格子酸素欠陥を埋め戻す。また、CO 生成量は格子酸素欠陥の減少に従って減少する。

これらの結果から、電場の印加によって表面酸素と CH_4 、 CO_2 との反応が大きく促進されることから、電場には酸化物担体の表面酸素の反応性を向上させる効果があると考えられる。このように活性化された表面酸素は Pt と CeO₂ の界面で容易に CH_4 と反応し、格子酸素欠陥を生じさせる。また、電場を印加したとき、 CO_2 の吸着が促進される。以上から、酸化物担体上の電場によって活性化された表面酸素と格子酸素欠陥はどちらも CO_2 吸着の促進に寄与する。吸着した CO_2 は carbonate 種を形成し、反応の後 CO として脱離する。残存した酸素種は CH_4 の酸化剤として再び作用する。これらより、電場 DRM 反応は CeO₂ の酸化と還元の循環を通して進行することが示唆された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計33件（うち査読付論文 24件 / うち国際共著 7件 / うちオープンアクセス 12件）

1. 著者名 Murakami Kota, Mizutani Yuta, Sampei Hiroshi, Ishikawa Atsushi, Tanaka Yuta, Hayashi Sasuga, Doi Sae, Higo Takuma, Tsuneki Hideaki, Nakai Hiromi, Sekine Yasushi	4. 巻 23
2. 論文標題 Theoretical prediction by DFT and experimental observation of heterocation-doping effects on hydrogen adsorption and migration over the CeO ₂ (111) surface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 4509 ~ 4516
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CP05752E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Tanaka Yuta, Murakami Kota, Doi Sae, Ito Kazuharu, Saegusa Koki, Mizutani Yuta, Hayashi Sasuga, Higo Takuma, Tsuneki Hideaki, Nakai Hiromi, Sekine Yasushi	4. 巻 11
2. 論文標題 Effects of A-site composition of perovskite (Sr _{1-x} BaxZrO ₃) oxides on H atom adsorption, migration, and reaction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 7621 ~ 7626
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1ra00180a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Makiura Jun-Ichiro, Higo Takuma, Kurosawa Yutaro, Murakami Kota, Ogo Shuhei, Tsuneki Hideaki, Hashimoto Yasushi, Sato Yasushi, Sekine Yasushi	4. 巻 12
2. 論文標題 Fast oxygen ion migration in Cu ₂ In ₂ O ₇ oxide bulk and its utilization for effective CO ₂ conversion at lower temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 2108 ~ 2113
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0sc05340f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Sekine Yasushi, Manabe Ryo	4. 巻 -
2. 論文標題 Reaction mechanism of low-temperature catalysis by surface protonics in an electric field	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Faraday Discussions	6. 最初と最後の頁 in press.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9FD00129H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uslamin Evgeny A., Saito Hikaru, Sekine Yasushi, Hensen Emiel J.M., Kosinov Nikolay	4. 巻 -
2. 論文標題 Different mechanisms of ethane aromatization over Mo/ZSM-5 and Ga/ZSM-5 catalysts	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 in press.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2020.04.021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Murakami Kota, Sekine Yasushi	4. 巻 22
2. 論文標題 Recent progress in use and observation of surface hydrogen migration over metal oxides	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 22852 ~ 22863
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CP04139D	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Torimoto Maki, Ogo Shuhei, Hisai Yudai, Nakano Naoya, Takahashi Ayako, Ma Quanbao, Seo Jeong Gil, Tsuneki Hideaki, Norby Truls, Sekine Yasushi	4. 巻 10
2. 論文標題 Support effects on catalysis of low temperature methane steam reforming	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 26418 ~ 26424
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0RA04717A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Saito Hikaru, Sekine Yasushi	4. 巻 10
2. 論文標題 Catalytic conversion of ethane to valuable products through non-oxidative dehydrogenation and dehydroaromatization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 21427 ~ 21453
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0RA03365K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Toko Kenta, Ito Kazuharu, Saito Hikaru, Hosono Yukiko, Murakami Kota, Misaki Satoshi, Higo Takuma, Ogo Shuhei, Tsuneki Hideaki, Maeda Shun, Hashimoto Kunihide, Nakai Hiromi, Sekine Yasushi	4. 巻 124
2. 論文標題 Catalytic Dehydrogenation of Ethane over Doped Perovskite via the Mars-van Krevelen Mechanism	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 10462 ~ 10469
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c00138	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takahashi Ayako, Inagaki Reona, Torimoto Maki, Hisai Yudai, Matsuda Taku, Ma Quanbao, Seo Jeong Gil, Higo Takuma, Tsuneki Hideaki, Ogo Shuhei, Norby Truls, Sekine Yasushi	4. 巻 10
2. 論文標題 Effects of metal cation doping in CeO ₂ support on catalytic methane steam reforming at low temperature in an electric field	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 14487 ~ 14492
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0ra01721c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Takahashi Ayako, Inagaki Reona, Torimoto Maki, Hisai Yudai, Matsuda Taku, Ma Quanbao, Seo Jeong Gil, Higo Takuma, Tsuneki Hideaki, Ogo Shuhei, Norby Truls, Sekine Yasushi	4. 巻 10
2. 論文標題 Effects of metal cation doping in CeO ₂ support on catalytic methane steam reforming at low temperature in an electric field	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 14487 ~ 14492
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0ra01721c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Murakami Kota, Tanaka Yuta, Sakai Ryuya, Hisai Yudai, Hayashi Sasuga, Mizutani Yuta, Higo Takuma, Ogo Shuhei, Seo Jeong Gil, Tsuneki Hideaki, Sekine Yasushi	4. 巻 56
2. 論文標題 Key factor for the anti-Arrhenius low-temperature heterogeneous catalysis induced by H ⁺ migration: H ⁺ coverage over support	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 3365 ~ 3368
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cc00482k	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Hisai Yudai, Murakami Kota, Kamite Yukiko, Ma Quanbao, V?illestad Einar, Manabe Ryo, Matsuda Taku, Ogo Shuhei, Norby Truls, Sekine Yasushi	4. 巻 56
2. 論文標題 First observation of surface protonics on SrZrO ₃ perovskite under a H ₂ atmosphere	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 2699 ~ 2702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9cc08757e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Yamada Kensei, Ogo Shuhei, Yamano Ryota, Higo Takuma, Sekine Yasushi	4. 巻 49
2. 論文標題 Low-temperature Conversion of Carbon Dioxide to Methane in an Electric Field	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 303 ~ 306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.190930	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Torimoto Maki, Murakami Kota, Sekine Yasushi	4. 巻 92
2. 論文標題 Low-Temperature Heterogeneous Catalytic Reaction by Surface Protonics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1785 ~ 1792
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20190194	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Sato Ayaka, Ogo Shuhei, Kamata Keigo, Takeno Yuna, Yabe Tomohiro, Yamamoto Tomokazu, Matsumura Syo, Hara Michikazu, Sekine Yasushi	4. 巻 55
2. 論文標題 Ambient-temperature oxidative coupling of methane in an electric field by a cerium phosphate nanorod catalyst	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 4019 ~ 4022
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9cc00174c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yabe Tomohiro, Yamada Kensei, Murakami Kota, Toko Kenta, Ito Kazuharu, Higo Takuma, Ogo Shuhei, Sekine Yasushi	4. 巻 7
2. 論文標題 Role of Electric Field and Surface Protonics on Low-Temperature Catalytic Dry Reforming of Methane	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 5690 ~ 5697
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.8b04727	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takise Kent, Sato Ayaka, Murakami Kota, Ogo Shuhei, Seo Jeong Gil, Imagawa Ken-ichi, Kado Shigeru, Sekine Yasushi	4. 巻 9
2. 論文標題 Irreversible catalytic methylcyclohexane dehydrogenation by surface protonics at low temperature	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 5918 ~ 5924
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9ra00407f	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takise Kent, Sato Ayaka, Muraguchi Keisuke, Ogo Shuhei, Sekine Yasushi	4. 巻 573
2. 論文標題 Steam reforming of aromatic hydrocarbon at low temperature in electric field	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Catalysis A: General	6. 最初と最後の頁 56 ~ 63
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcata.2019.01.011	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Murakami Kota, Tanaka Yuta, Sakai Ryuya, Toko Kenta, Ito Kazuharu, Ishikawa Atsushi, Higo Takuma, Yabe Tomohiro, Ogo Shuhei, Ikeda Masatoshi, Tsuneki Hideaki, Nakai Hiromi, Sekine Yasushi	4. 巻 in press
2. 論文標題 The important role of N ₂ H formation energy for low-temperature ammonia synthesis in an electric field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2018.10.055	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yabe Tomohiro, Yamada Kensei, Oguri Task, Higo Takuma, Ogo Shuhei, Sekine Yasushi	4. 巻 8
2. 論文標題 Ni?Mg Supported Catalysts on Low-Temperature Electrocatalytic Tri-reforming of Methane with Suppressed Oxidation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 11470 ~ 11477
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.8b02476	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yabe Tomohiro, Sekine Yasushi	4. 巻 181
2. 論文標題 Methane conversion using carbon dioxide as an oxidizing agent: A review	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Fuel Processing Technology	6. 最初と最後の頁 187 ~ 198
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.fuproc.2018.09.014	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Manabe Shota, Yabe Tomohiro, Nakano Atsushi, Nagatake Satoshi, Higo Takuma, Ogo Shuhei, Nakai Hiromi, Sekine Yasushi	4. 巻 711
2. 論文標題 Theoretical investigation on structural effects of Pt?Mn catalyst on activity and selectivity for methylcyclohexane dehydrogenation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 73 ~ 76
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpllett.2018.09.026	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Inagaki Reona, Manabe Ryo, Hisai Yudai, Kamite Yukiko, Yabe Tomohiro, Ogo Shuhei, Sekine Yasushi	4. 巻 43
2. 論文標題 Steam reforming of dimethyl ether promoted by surface protonics in an electric field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 International Journal of Hydrogen Energy	6. 最初と最後の頁 14310 ~ 14318
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijhydene.2018.05.164	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gondo Ami, Manabe Ryo, Sakai Ryuya, Murakami Kota, Yabe Tomohiro, Ogo Shuhei, Ikeda Masatoshi, Tsuneki Hideaki, Sekine Yasushi	4. 巻 148
2. 論文標題 Ammonia Synthesis Over Co Catalyst in an Electric Field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Catalysis Letters	6. 最初と最後の頁 1929 ~ 1938
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10562-018-2404-6	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ogino Kentaro, Sasaki Yusuke, Kurosawa Yutaro, Ogo Shuhei, Yabe Tomohiro, Kondo Wakichi, Ono Taisuke, Kojima Kunihiro, Sekine Yasushi	4. 巻 47
2. 論文標題 Hydrogen Production by Water Decomposition through Redox Reaction of Ce-based Metal Oxide Systems in Electric Field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 643 ~ 646
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.180055	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Ogino, Y. Sasaki, Y. Kurosawa, S. Ogo, T. Yabe, W. Kondo, T. Ono, K. Kojima, Y. Sekine	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 Hydrogen production by water decomposition through redox reaction of Ce-based metal oxide systems in electric field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.180055	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Ogo, H. Nakatsubo, K. Iwasaki, A. Sato, K. Murakami, T. Yabe, A. Ishikawa, H. Nakai, Y. Sekine	4. 巻 122
2. 論文標題 Electron-Hopping Brings Lattice Strain and High Catalytic Activity in Low Temperature Oxidative Coupling of Methane in an Electric Field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C	6. 最初と最後の頁 2089-2096
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b08994	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 R. Manabe, S. Stub, T. Norby, Y. Sekine	4. 巻 270
2. 論文標題 Evaluating surface protonic transport on cerium oxide via electrical impedance spectroscopy measurement	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Solid State Communications	6. 最初と最後の頁 45-49
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssc.2017.11.010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 H. Saito, S. Inagaki, K. Kojima, Q. Han, T. Yabe, S. Ogo, Y. Kubota, Y. Sekine	4. 巻 549
2. 論文標題 Preferential dealumination of Zn/H-ZSM-5 and its high and stable activity for ethane dehydroaromatization	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Appl. Catal. A: Gen.	6. 最初と最後の頁 76-81
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcata.2017.09.024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Ogo, K. Iwasaki, K. Sugiura, A. Sato, T. Yabe, Y. Sekine	4. 巻 299
2. 論文標題 Catalytic oxidative conversion of methane and ethane over polyoxometalate-derived catalysts in electric field at low temperature	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Catal. Today	6. 最初と最後の頁 80-85
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2017.05.013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Murakami, R. Manabe, H. Nakatsubo, T. Yabe, S. Ogo, Y. Sekine	4. 巻 303
2. 論文標題 Elucidation of the role of electric field on low temperature ammonia synthesis using isotopes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Catal. Today	6. 最初と最後の頁 271-275
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2017.08.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Okada, R. Manabe, R. Inagaki, S. Ogo, Y. Sekine	4. 巻 307
2. 論文標題 Methane dissociative adsorption in catalytic steam reforming of methane over Pd/CeO ₂ in an electric field	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Catal. Today	6. 最初と最後の頁 272-276
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2017.05.079	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 土井咲英・田中雄太・村上洸太・伊東一陽・水谷優太・七種紘規・比護拓馬・常木英昭・関根 泰
2. 発表標題 Ru/ペロブスカイト触媒における担体組成の電場アンモニア合成への影響
3. 学会等名 触媒学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡辺光亮・細野由希子・比護拓馬・斎藤晃・前田駿・橋本国秀・関根 泰
2. 発表標題 CoドーピングCeO ₂ を用いたレドックス機構を介するエタン脱水素反応
3. 学会等名 触媒学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yasushi Sekine
2. 発表標題 Reaction mechanism of low-temperature catalysis by surface protonics in an electric field
3. 学会等名 Royal Society of Chemistry, Faraday Discussions (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kota Murakami, Yuta Tanaka, Sasuga Hayashi, Ryuya Sakai, Yudai Hisai, Shuhei Ogo, Jeong Gil Seo, Atsushi Ishikawa, Hideaki Tsuneki, Yasushi Sekine
2. 発表標題 Insight into the governing factors for ammonia synthesis in the electric field using a DFT study
3. 学会等名 JPI conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasushi SEKINE
2. 発表標題 Surface ionics/protonics for catalysis at low temperatures
3. 学会等名 International Symposium on C1 Gas Refinery (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasushi SEKINE
2. 発表標題 Catalytic reaction at low temperature by surface protonics
3. 学会等名 ETH Zurich symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasushi SEKINE
2. 発表標題 Low Temperature Catalytic Reaction in an Electric Field
3. 学会等名 Korea Japan Symposium on Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasushi SEKINE
2. 発表標題 Investigation of heterogenous catalysis using surface ion hopping and its utilization
3. 学会等名 日本化学会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 関根 泰
2. 発表標題 表面プロトニクスによる低温での反応と表面伝導メカニズムの解析
3. 学会等名 表面技術協会関東支部講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 関根 泰
2. 発表標題 表面プロトニクスを活かした低温アンモニア合成
3. 学会等名 JACI講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 関根 泰
2. 発表標題 表面プロトニクス・イオニクスを活かした非在来型触媒反応
3. 学会等名 触媒学会つくば地区講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 関根 泰
2. 発表標題 電解合成への期待：次世代の化学プロセスに向けて
3. 学会等名 電解技術討論会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 関根 泰
2. 発表標題 表面プロトニクスを活かした低温作動触媒
3. 学会等名 岩澤コンファレンス（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Sekine
2. 発表標題 Low temperature catalytic reaction in an electric field
3. 学会等名 International Symposium on Advancement and Prospect of Catalysis Science & Technology（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 瀧瀬 賢人、稲垣 玲於奈、関根 泰	4. 発行年 2018年
2. 出版社 日本防錆技術協会	5. 総ページ数 6
3. 書名 防錆管理	

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室ウェブサイト
www.f.waseda.jp/ysekine
研究室WEB
www.f.waseda.jp/ysekine/
研究室ウェブサイト
http://www.f.waseda.jp/ysekine/
研究室紹介
http://www.f.waseda.jp/ysekine/

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------